

PCTWELTORGANISATION FÜR GEISTIGES EIGENTUM
Internationales BüroINTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE
INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)

(51) Internationale Patentklassifikation 7 : C10L 1/22, 1/18, 1/24, 10/00, 10/04		A1	(11) Internationale Veröffentlichungsnummer: WO 00/47698
			(43) Internationales Veröffentlichungsdatum: 17. August 2000 (17.08.00)
(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP00/00911			(81) Bestimmungsstaaten: AE, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, CA, CH, CN, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ARIPO Patent (GH, GM, KE, LS, MW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).
(22) Internationales Anmeldedatum: 5. Februar 2000 (05.02.00)			
(30) Prioritätsdaten: 199 05 211.5 9. Februar 1999 (09.02.99) DE			
(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US): BASF AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE]; D-67056 Ludwigshafen (DE).			
(72) Erfinder; und (75) Erfinder/Anmelder (nur für US): SCHWAHN, Harald [DE/DE]; Schloßstrasse 68, D-69168 Wiesloch (DE). POSSELT, Dietmar [DE/DE]; Ziegelhäuser Landstrasse 7, D-69120 Heidelberg (DE).			
(74) Gemeinsamer Vertreter: BASF AKTIENGESELLSCHAFT; D-67056 Ludwigshafen (DE).			Veröffentlicht <i>Mit internationalem Recherchenbericht. Vor Ablauf der für Änderungen der Ansprüche zugelassenen Frist; Veröffentlichung wird wiederholt falls Änderungen eintreffen.</i>
(54) Title: FUEL COMPOSITION			
(54) Bezeichnung: KRAFTSTOFFZUSAMMENSETZUNG			
(57) Abstract <p>The invention relates to a fuel composition which is contained in a larger amount of motor petrol. Said composition comprises an aromatics content of 42 vol. % at most and a sulphur content of 150 wt. % ppm at most as well as a smaller amount of at least one motor petrol additive which has a detergent effect or which inhibits the wear of valve seats. Said additive is provided with at least one hydrophobic hydrocarbon radical with a numeric mean molecular weight of 85 to 20,000 and at least one polar grouping.</p>			
(57) Zusammenfassung <p>Kraftstoffzusammensetzung, enthaltend in einer grösseren Menge einen Ottokraftstoff mit einem Aromatengehalt von maximal 42 Vol.-% und einem Schwefelgehalt von maximal 150 Gew.-ppm, sowie in einer kleineren Menge mindestens ein Ottokraftstoffadditiv mit Detergenzwirkung oder mit ventilsitzverschleisshemmender Wirkung, wobei dieses Ottokraftstoffadditiv mindestens einen hydrophoben Kohlenwasserstoffrest mit einem zahlengemittelten Molekulargewicht von 85 bis 20 000 und mindestens eine polare Gruppierung aufweist.</p>			

LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

AL	Albanien	ES	Spanien	LS	Lesotho	SI	Slowenien
AM	Armenien	FI	Finnland	LT	Litauen	SK	Slowakei
AT	Österreich	FR	Frankreich	LU	Luxemburg	SN	Senegal
AU	Australien	GA	Gabun	LV	Lettland	SZ	Swasiland
AZ	Aserbaidshan	GB	Vereinigtes Königreich	MC	Monaco	TD	Tschad
BA	Bosnien-Herzegowina	GE	Georgien	MD	Republik Moldau	TG	Togo
BB	Barbados	GH	Ghana	MG	Madagaskar	TJ	Tadschikistan
BE	Belgien	GN	Guinea	MK	Die ehemalige jugoslawische	TM	Turkmenistan
BF	Burkina Faso	GR	Griechenland		Republik Mazedonien	TR	Türkei
BG	Bulgarien	HU	Ungarn	ML	Mali	TT	Trinidad und Tobago
BJ	Benin	IE	Irland	MN	Mongolei	UA	Ukraine
BR	Brasilien	IL	Israel	MR	Mauretanien	UG	Uganda
BY	Belarus	IS	Island	MW	Malawi	US	Vereinigte Staaten von
CA	Kanada	IT	Italien	MX	Mexiko		Amerika
CF	Zentralafrikanische Republik	JP	Japan	NE	Niger	UZ	Usbekistan
CG	Kongo	KE	Kenia	NL	Niederlande	VN	Vietnam
CH	Schweiz	KG	Kirgisistan	NO	Norwegen	YU	Jugoslawien
CI	Côte d'Ivoire	KP	Demokratische Volksrepublik	NZ	Neuseeland	ZW	Zimbabwe
CM	Kamerun		Korea	PL	Polen		
CN	China	KR	Republik Korea	PT	Portugal		
CU	Kuba	KZ	Kasachstan	RO	Rumänien		
CZ	Tschechische Republik	LC	St. Lucia	RU	Russische Föderation		
DE	Deutschland	LI	Liechtenstein	SD	Sudan		
DK	Dänemark	LK	Sri Lanka	SE	Schweden		
EE	Estland	LR	Liberia	SG	Singapur		

Kraftstoffzusammensetzung

Beschreibung

5

Die vorliegende Erfindung betrifft eine Kraftstoffzusammensetzung enthaltend in einer größeren Menge einen speziellen Ottokraftstoff sowie in einer kleineren Menge ausgewählte Ottokraftstoffadditive.

10

Vergaser und Einlaßsysteme von Ottomotoren, aber auch Einspritzsysteme für die Kraftstoffdosierung, werden in zunehmendem Maße durch Verunreinigungen belastet, die durch Staubteilchen aus der Luft, unverbrannte Kohlenwasserstoffreste aus dem Brennraum und

15 die in den Vergaser geleiteten Kurbelwellengehäuseentlüftungsgase verursacht werden.

Diese Rückstände verschieben das Luft-Kraftstoff-Verhältnis im Leerlauf und im unteren Teillastbereich, so daß das Gemisch magerer, die Verbrennung unvollständiger und wiederum die Anteile unverbrannter oder teilverbrannter Kohlenwasserstoffe im Abgas größer werden und der Benzinverbrauch steigt.

20

Es ist bekannt, daß zur Vermeidung dieser Nachteile Kraftstoffadditive zur Reinhaltung von Ventilen und Vergaser bzw. Einspritzsystemen von Ottomotoren verwendet werden (vgl. z.B.: M. Rossenbeck in Katalysatoren, Tenside, Mineralöladditive, Hrsg. J. Falbe, U. Hasserodt, S. 223, G. Thieme Verlag, Stuttgart 1978).

25

30 Weiterhin taucht bei Ottomotoren älterer Bauart das Problem des Ventilsitzverschleißes beim Betreiben mit bleifreien Ottokraftstoffen auf. Hiergegen wurden ventilsitzverschleißhemmende Additive auf Basis von Alkali- oder Erdalkalimetallverbindungen entwickelt.

35

Moderne Ottomotoren erfordern für einen störungsfreien Einsatz Kraftstoffe mit einem komplexen Eigenschaftsprofil, das nur in Kombination mit entsprechenden Ottokraftstoffadditiven gewährleistet werden kann. Derartige Ottokraftstoffe bestehen in der Regel

40

aus einem komplexen Gemisch chemischer Verbindungen und sind durch physikalische Größen charakterisiert. Das Zusammenspiel zwischen Ottokraftstoffen und entsprechenden Additiven ist aber bei den bekannten Kraftstoffzusammensetzungen hinsichtlich der reinigenden bzw. reinhaltenden und der ventilsitzverschleißhem-

45

denden Wirkung noch verbesserungsbedürftig.

Aufgabe der vorliegenden Erfindung war es daher, eine wirksamere Ottokraftstoff-Ottokraftstoffadditiv-Zusammensetzung zu finden.

Demgemäß wurde eine Kraftstoffzusammensetzung gefunden, welche in 5 einer größeren Menge einen Ottokraftstoff mit einem Aromaten-gehalt von maximal 42 Vol.-% und einem Schwefelgehalt von maximal 150 Gew.-ppm, sowie in einer kleineren Menge mindestens ein Ottokraftstoffadditiv mit Detergenzwirkung oder mit ventilsitzver-
schleißhemmender Wirkung, enthält, wobei dieses Ottokraftstoffad-
10 ditiv mindestens einen hydrophoben Kohlenwasserstoffrest mit einem zahlengemittelten Molekulargewicht (M_N) von 85 bis 20 000 und mindestens eine polare Gruppierung ausgewählt aus

- 15 (a) Mono- oder Polyaminogruppen mit bis zu 6 Stickstoffatomen, wobei mindestens ein Stickstoffatom basische Eigenschaften hat,
- (b) Nitrogruppen, ggf. in Kombination mit Hydroxylgruppen,
- 20 (c) Hydroxylgruppen in Kombination mit Mono- oder Polyaminogruppen, wobei mindestens ein Stickstoffatom basische Eigenschaften hat,
- (d) Carboxylgruppen oder deren Alkalimetall- oder Erdalkali-
25 metallsalzen,
- (e) Sulfonsäuregruppen oder deren Alkalimetall- oder Erdalkalimetallsalzen,
- 30 (f) Polyoxy- C_2 - bis C_4 -alkylengruppierungen, die durch Hydroxylgruppen, Mono- oder Polyaminogruppen, wobei mindestens ein Stickstoffatom basische Eigenschaften hat, oder durch Carbamatgruppen terminiert sind,
- 35 (g) Carbonsäureestergruppen,
- (h) aus Bernsteinsäureanhydrid abgeleitete Gruppierungen mit Hydroxy- und/oder Amino- und/oder Amido- und/oder Imidogruppen und
40 (i) durch Mannich-Umsetzung von substituierten Phenolen mit Aldehyden und Mono- oder Polyaminen erzeugte Gruppierungen
- 45 aufweist.

Der Aromatengehalt des Ottokraftstoffes beträgt vorzugsweise maximal 40 Vol.-%, insbesondere maximal 38 Vol.-%. Bevorzugte Bereiche für den Aromatengehalt liegen bei 20 bis 42 Vol.-%, insbesondere bei 25 bis 40 Vol.-%.

5

Der Schwefelgehalt des Ottokraftstoffes beträgt vorzugsweise maximal 100 Gew.-ppm, insbesondere maximal 50 Gew.-ppm. Bevorzugte Bereiche für den Schwefelgehalt liegen bei 0,5 bis 150 Gew.-ppm, insbesondere bei 1 bis 100 Gew.-ppm.

10

In einer bevorzugten Ausführungsform weist der Ottokraftstoff einen Olefingehalt von maximal 21 Vol.-%, vorzugsweise maximal 18 Vol.-%, insbesondere maximal 10 Vol.-%, auf. Bevorzugte Bereiche für den Olefingehalt liegen bei 6 bis 21 Vol.-%, insbesondere bei 7 bis 18 Vol.-%.

15

In einer weiteren bevorzugten Ausführungsform weist der Ottokraftstoff einen Benzolgehalt von maximal 1,0 Vol.-%, insbesondere maximal 0,9 Vol.-%, auf. Bevorzugte Bereiche für den Benzolgehalt liegen bei 0,5 bis 1,0 Vol.-%, insbesondere bei 0,6 bis 0,9 Vol.-%.

20

In einer weiteren bevorzugten Ausführungsform weist der Ottokraftstoff einen Sauerstoffgehalt von maximal 2,7 Gew.-%, vorzugsweise von 0,1 bis 2,7 Gew.-%, vor allem von 1,0 bis 2,7 Gew.-%, insbesondere von 1,2 bis 2,0 Gew.-%, auf.

25

Besonders bevorzugt wird ein Ottokraftstoff, welcher gleichzeitig einen Aromatengehalt von maximal 38 Vol.-%, einen Olefingehalt von maximal 21 Vol.-%, einen Schwefelgehalt von maximal 50 Gew.-ppm, einen Benzolgehalt von maximal 1,0 Vol.-% und einen Sauerstoffgehalt von 1,0 bis 2,7 Gew.-% aufweist.

30

Der Gehalt an Alkoholen und Ethern im Ottokraftstoff ist normalerweise relativ niedrig. Typische maximale Gehalte sind für Methanol 3 Vol.-%, für Ethanol 5 Vol.-%, für Isopropanol 10 Vol.-%, für tert.-Butanol 7 Vol.-%, für Isobutanol 10 Vol.-% und für Ether mit 5 oder mehr C-Atomen im Molekül 15 Vol.-%.

35

Der Sommer-Dampfdruck des Ottokraftstoffes beträgt üblicherweise maximal 70 kPa, insbesondere 60 kPa (jeweils bei 37°C).

40

Die Research-Octan-Zahl ("ROZ") des Ottokraftstoffes beträgt in der Regel 90 bis 100. Ein üblicher Bereich für die entsprechende Motor-Octan-Zahl ("MOZ") liegt bei 80 bis 90.

45

Die genannten Spezifikationen werden nach üblichen Methoden bestimmt (DIN EN 228).

Der hydrophobe Kohlenwasserstoffrest in den Ottokraftstoffadditiven, welcher für die ausreichende Löslichkeit im Kraftstoff sorgt, hat ein zahlengemittelttes Molekulargewicht (M_N) von 85 bis 20 000, insbesondere von 113 bis 10 000, vor allem von 300 bis 5000. Als typischer hydrophober Kohlenwasserstoffrest, insbesondere in Verbindung mit den polaren Gruppierungen (a), (c), (h) und (i), kommen der Polypropenyl-, Polybutenyl- und Polyisobutenylrest mit jeweils $M_N = 300$ bis 5000, insbesondere 500 bis 2500, vor allem 750 bis 2250, in Betracht.

Als einzelne Ottokraftstoffadditive mit Detergenzwirkung oder mit ventilsitzverschleißhemmender Wirkung seien die folgenden genannt.

Mono- oder Polyaminogruppen (a) enthaltende Additive sind vorzugsweise Polyalkenmono- oder Polyalkenpolyamine auf Basis von Polypropen oder von hochreaktivem (d.h. mit überwiegend endständigen Doppelbindungen - meist in der α - und β -Position) oder konventionellem (d.h. mit überwiegend mittenständigen Doppelbindungen) Polybuten oder Polyisobuten mit $M_N = 300$ bis 5000. Derartige Additive auf Basis von hochreaktivem Polyisobuten, welche aus dem Polyisobuten, welches bis zu 20 Gew.-% n-Buten-Einheiten enthalten kann, durch Hydroformylierung und reduktive Aminierung mit Ammoniak, Monoaminen oder Polyaminen wie Dimethylaminopropylamin, Ethylendiamin, Diethylentriamin, Triethyltetramin oder Tetraethylenpentamin hergestellt werden können, sind insbesondere aus der EP-A 244 616 bekannt. Geht man bei der Herstellung der Additive von Polybuten oder Polyisobuten mit überwiegend mittenständigen Doppelbindungen (meist in der β - und γ -Position) aus, bietet sich der Herstellweg durch Chlorierung und anschließende Aminierung oder durch Oxidation der Doppelbindung mit Luft oder Ozon zur Carbonyl- oder Carboxylverbindung und anschließende Aminierung unter reduktiven (hydrierenden) Bedingungen an. Zur Aminierung können hier die gleichen Amine wie oben für die reduktive Aminierung des hydroformylierten hochreaktiven Polyisobutens eingesetzt werden. Entsprechende Additive auf Basis von Polypropen sind insbesondere in der WO-A 94/24231 beschrieben.

Weitere bevorzugte Monoaminogruppen (a) enthaltende Additive sind die Hydrierungsprodukte der Umsetzungsprodukte aus Polyisobutenen mit einem mittleren Polymerisationsgrad $P = 5$ bis 100 mit Stickoxiden oder Gemischen aus Stickoxiden und Sauerstoff, wie sie insbesondere in WO-A 97/03946 beschrieben sind.

Weitere bevorzugte Monoaminogruppen (a) enthaltende Additive sind die aus Polyisobutenepoxiden durch Umsetzung mit Aminen und nachfolgende Dehydratisierung und Reduktion der Aminoalkohole erhältlichen Verbindungen, wie sie insbesondere in DE-A 196 20 262 beschrieben sind.

Nitrogruppen, ggf. in Kombination mit Hydroxylgruppen, (b) enthaltende Additive sind vorzugsweise Umsetzungsprodukte aus Polyisobutenen des mittleren Polymerisationsgrades $P = 5$ bis 100 oder 10 bis 100 mit Stickoxiden oder Gemischen aus Stickoxiden und Sauerstoff, wie sie insbesondere in WO-A 96/03367 und WO-A 96/03479 beschrieben sind. Diese Umsetzungsprodukte stellen in der Regel Mischungen aus reinen Nitropolyisobutanen (z.B. α, β -Dinitropolyisobutan) und gemischten Hydroxynitropolyisobutanen (z.B. α -Nitro- β -hydroxypolyisobutan) dar.

Hydroxylgruppen in Kombination mit Mono- oder Polyaminogruppen (c) enthaltende Additive sind insbesondere Umsetzungsprodukte von Polyisobutenepoxiden, erhältlich aus vorzugsweise überwiegend endständige Doppelbindungen aufweisendem Polyisobuten mit $M_N = 300$ bis 5000, mit Ammoniak, Mono- oder Polyaminen, wie sie insbesondere in EP-A 476 485 beschrieben sind.

Carboxylgruppen oder deren Alkalimetall- oder Erdalkalimetallsalze (d) enthaltende Additive sind vorzugsweise Copolymere von C_2 - C_{40} -Olefinen mit Maleinsäureanhydrid mit einer Gesamt-Molmasse von 500 bis 20 000, deren Carboxylgruppen ganz oder teilweise zu den Alkalimetall- oder Erdalkalimetallsalzen und ein verbleibender Rest der Carboxylgruppen mit Alkoholen oder Aminen umgesetzt sind. Solche Additive sind insbesondere aus der EP-A 307 815 bekannt. Derartige Additive dienen hauptsächlich zur Verhinderung von Ventilsitzverschleiß und können, wie in der WO-A 87/01126 beschrieben, mit Vorteil in Kombination mit üblichen Kraftstoffdetergenzien wie Poly(iso)butenaminen oder Polyetheraminen eingesetzt werden.

Sulfonsäuregruppen oder deren Alkalimetall- oder Erdalkalimetallsalze (e) enthaltende Additive sind vorzugsweise Alkalimetall- oder Erdalkalimetallsalze eines Sulfobernsteinsäurealkylesters, wie er insbesondere in der EP-A 639 632 beschrieben ist. Derartige Additive dienen hauptsächlich zur Verhinderung von Ventilsitzverschleiß und können mit Vorteil in Kombination mit üblichen Kraftstoffdetergenzien wie Poly(iso)butenaminen oder Polyetheraminen eingesetzt werden.

- Polyoxy-C₂- bis C₄-alkylengruppierungen (f) enthaltende Additive sind vorzugsweise Polyether oder Polyetheramine, welche durch Umsetzung von C₂- bis C₆₀-Alkanolen, C₆- bis C₃₀-Alkandiolen, Mono- oder Di-C₂-C₃₀-alkylaminen, C₁-C₃₀-Alkylcyclohexanolen oder
- 5 C₁-C₃₀-Alkylphenolen mit 1 bis 30 mol Ethylenoxid und/oder Propylenoxid und/oder Butylenoxid pro Hydroxylgruppe oder Amino- gruppe und, im Falle der Polyetheramine, durch anschließende reduktive Aminierung mit Ammoniak, Monoaminen oder Polyaminen erhältlich sind. Derartige Produkte werden insbesondere in
- 10 EP-A 310 875, EP-A 356 725, EP-A 700 985 und US-A 4 877 416 beschrieben. Im Falle von Polyethern erfüllen solche Produkte auch Trägeröleigenschaften. Typische Beispiele hierfür sind Tri- decanol- oder Isotridecanolbutoxylate, Isononylphenolbutoxylate sowie Polyisobutenolbutoxylate und -propoxylate sowie die ent-
- 15 sprechenden Umsetzungsprodukte mit Ammoniak.

- Carbonsäureestergruppen (g) enthaltende Additive sind vorzugsweise Ester aus Mono-, Di- oder Tricarbonsäuren mit langkettigen Alkanolen oder Polyolen, insbesondere solche mit einer Mindest-
- 20 viskosität von 2 mm²/s bei 100°C, wie sie insbesondere in DE-A 38 38 918 beschrieben sind. Als Mono-, Di- oder Tricarbon- säuren können aliphatische oder aromatische Säuren eingesetzt werden, als Esteralkohole bzw. -polyole eignen sich vor allem langkettige Vertreter mit beispielsweise 6 bis 24 C-Atomen.
- 25 Typische Vertreter der Ester sind Adipate, Phthalate, iso-Phthalate, Terephthalate und Trimellitate des iso-Octanols, iso-Non- nols, iso-Decanols und des iso-Tridecanols. Derartige Produkte erfüllen auch Trägeröleigenschaften.
- 30 Aus Bernsteinsäureanhydrid abgeleitete Gruppierungen mit Hydroxy- und/oder Amino- und/oder Amido- und/oder Imidogruppen (h) enthal- tende Additive sind vorzugsweise entsprechende Derivate von Poly- isobutenylbernsteinsäureanhydrid, welche durch Umsetzung von kon- ventionellem oder hochreaktivem Polyisobuten mit M_N = 300 bis 5000
- 35 mit Maleinsäureanhydrid auf thermischen Wege oder über das chlo- rierte Polyisobuten erhältlich sind. Von besonderem Interesse sind hierbei Derivate mit aliphatischen Polyaminen wie Ethylen- diamin, Diethylentriamin, Triethylentetramin oder Tetraethylen- pentamin. Derartige Ottokraftstoffadditive sind insbesondere in
- 40 US-A 4 849 572 beschrieben.

- Durch Mannich-Umsetzung von substituierten Phenolen mit Aldehyden und Mono- oder Polyaminen erzeugte Gruppierungen (i) enthaltende Additive sind vorzugsweise Umsetzungsprodukte von polyisobuten-
- 45 substituierten Phenolen mit Formaldehyd und Mono- oder Polyaminen wie Ethylendiamin, Diethylentriamin, Triethylentetramin, Tetrae- thylenpentamin oder Dimethylaminopropylamin. Die polyisobutenyl-

substituierten Phenole können aus konventionellem oder hochreaktivem Polyisobuten mit $M_N = 300$ bis 5000 stammen. Derartige „Polyisobuten-Mannichbasen“ sind insbesondere in der EP-A 831 141 beschrieben.

5

Zur genaueren Definition der einzelnen aufgeführten Ottokraftstoffadditive wird hier auf die Offenbarungen der obengenannten Schriften des Standes der Technik ausdrücklich Bezug genommen.

- 10 Die erfindungsgemäße Kraftstoffzusammensetzung kann darüber hinaus noch weitere übliche Komponenten und Additive enthalten. Hier sind in erster Linie Trägeröle ohne ausgeprägte Detergenzwirkung zu nennen, beispielsweise mineralische Trägeröle (Grundöle), insbesondere solche der Viskositätsklasse "Solvent Neutral (SN) 500
15 bis 2000", und synthetische Trägeröle auf Basis von Olefinpolymerisaten mit $M_N = 400$ bis 1800, vor allem auf Polybuten- oder Polyisobuten-Basis (hydriert oder nicht hydriert), von Polyalphaolefinen oder Polyinternalolefinen.
- 20 Als Lösungs- oder Verdünnungsmittel (bei Bereitstellung von Additivpaketen) kommen aliphatische und aromatische Kohlenwasserstoffe, z.B. Solvent Naphtha, in Betracht.

- Weitere übliche Additive sind Korrosionsinhibitoren, beispielsweise auf Basis von zur Filmbildung neigenden Ammoniumsalzen organischer Carbonsäuren oder von heterocyclischen Aromaten bei Buntmetallkorrosionsschutz, Antioxidantien oder Stabilisatoren, beispielsweise auf Basis von Aminen wie p-Phenylendiamin, Dicyclohexylamin oder Derivaten hiervon oder von Phenolen wie 2,4-Di-
30 tert.-butylphenol oder 3,5-Di-tert.-butyl-4-hydroxyphenylpropionsäure, Demulgatoren, Antistatikmittel, Metallocene wie Ferrocen oder Methylcyclopentadienylmangantricarbonyl, Schmierfähigkeitsverbesserer (Lubricity-Additive) wie bestimmte Fettsäuren, Alkenylbernsteinsäureester, Bis(hydroxyalkyl)fettamine, Hydroxy-
35 acetamide oder Ricinusöl sowie Farbstoffe (Marker). Manchmal werden auch Amine zur Absenkung des pH-Wertes des Kraftstoffes zugesetzt.

- Für die erfindungsgemäße Kraftstoffzusammensetzung kommen weiterhin insbesondere Kombinationen des beschriebenen Ottokraftstoffes mit einer Mischung aus Ottokraftstoffadditiven mit der polaren Gruppierung (f) und Korrosionsinhibitoren und/oder Schmierfähigkeitsverbesserern auf Basis von Carbonsäuren oder Fettsäuren, welche als monomere und/oder dimere Species vorliegen können, in
45 Betracht. Typische Mischungen dieser Art enthalten Polyisobutenamine in Kombination mit alkanolgestarteten Polyethern wie Tri-decanol- oder Isotridecanolbutoxylaten oder -propoxylaten, Poly-

isobutenamine in Kombination mit alkanolgestarteten Polyetheraminen wie Tridecanol- oder Isotridecanolbutoxylat-Ammoniak-Umsetzungsprodukten und alkanolgestartete Polyetheramine wie Tridecanol- oder Isotridecanolbutoxylat-Ammoniak-Umsetzungsprodukte
5 in Kombination mit alkanolgestarteten Polyethern wie Tridecanol- oder Isotridecanolbutoxylaten oder -propoxylaten, jeweils zusammen mit den genannten Korrosionsinhibitoren bzw. Schmierfähigkeitsverbesserern.

- 10 Die genannten Ottokraftstoffadditive mit den polaren Gruppierungen (a) bis (i) sowie die sonstigen erwähnten Komponenten werden dem Ottokraftstoff zudosiert und entfalten dort ihre Wirkung. Die Komponenten bzw. Additive können dem Ottokraftstoff einzeln oder als vorher zubereitetes Konzentrat („Additivpaket“) zugegeben
15 werden.

Die genannten Ottokraftstoffadditive mit den polaren Gruppierungen (a) bis (i) werden dem Ottokraftstoff üblicherweise in einer Menge von 1 bis 5000 Gew.-ppm, insbesondere 5 bis 3000 Gew.-ppm,
20 vor allem 10 bis 1000 Gew.-ppm, zugegeben. Die sonstigen erwähnten Komponenten und Additive werden, wenn gewünscht, in hierfür üblichen Mengen zugesetzt.

Bei der erfindungsgemäßen Kraftstoffzusammensetzung läßt sich
25 überraschenderweise mit deutlich weniger Detergenz oder ventilsitzverschleißhemmendem Mittel die gleiche reinigende oder reinhaltende bzw. ventilsitzverschleißhemmende Wirkung erzielen wie bei herkömmlichen Kraftstoffzusammensetzungen des Standes der Technik. Weiterhin resultiert bei Einsatz der gleichen Mengen an
30 Detergenz oder ventilsitzverschleißhemmendem Mittel bei der erfindungsgemäßen Kraftstoffzusammensetzung gegenüber herkömmlichen Kraftstoffzusammensetzungen überraschenderweise eine deutlich bessere reinigende oder reinhaltende bzw. ventilsitzverschleißhemmende Wirkung.

35 Weiterhin zeigt die erfindungsgemäße Kraftstoffzusammensetzung zusätzlich dahingehend Vorteile, daß weniger Ablagerungen im Brennraum des Ottomotors gebildet werden und daß weniger Additiv über die Kraftstoffverdünnung in das Motorenöl eingetragen wird.

40 Die nachfolgenden Beispiele sollen die Erfindung näher erläutern, ohne sie jedoch zu beschränken.

45

Beispiele:

Als Ottokraftstoffe wurden die in Tabelle 1 aufgeführten mit der entsprechend angegebenen Spezifikation eingesetzt, wobei OK 1 5 einen typischen handelsüblichen Kraftstoff darstellt.

Tabelle 1

	Spezifikation	OK1 (zum Vergleich)	OK2 (erfindungsgemäß)
10	Aromatengehalt [Vol.-%]	48,4	41,8
	Benzolgehalt [Vol.-%]	2,0	1,0
15	Olefingehalt [Vol.-%]	22,6	7,8
	Sauerstoffgehalt [Gew.-%]	0,5	1,7
	Schwefelgehalt [Gew.-ppm]	245	90
20	Sommer-Dampfdruck (bei 37°C) [kPa]	78,4	69,3

25 Herstellung der Kraftstoffzusammensetzungen

Beispiel 1 (Vergleichsversuch)

700 mg eines Polyisobutenamins, hergestellt durch Hydroformy-
 30 lierung und anschließende reduktive Aminierung mit Ammoniak von hochreaktivem Polyisobuten mit $M_N = 1000$ und Verdünnung zu gleichen Gew.-Teilen mit C₁₀-C₁₄-Paraffin (Kerocom® PIBA der Fa. BASF Aktiengesellschaft), wurden in 1 kg OK1 gemäß Tabelle 1 gelöst.

35 Beispiel 2 (erfindungsgemäß)

700 mg des gleichen Polyisobutenamins wie in Beispiel 1 wurden in 1 kg OK2 gemäß Tabelle 1 gelöst.

40 Beispiel 3 (Vergleichsversuch)

600 mg einer handelsüblichen Additivzusammensetzung für Ottokraft-
 stoffe, enthaltend in einer üblichen Menge ein Detergenz mit Carbamatgruppen gemäß Gruppierung (f), wurden in 1 kg OK1 gemäß
 45 Tabelle 1 gelöst.

Beispiel 4 (erfindungsgemäß)

600 mg der gleichen handelsüblichen Additivzusammensetzung für Ottokraftstoffe wie in Beispiel 3 wurden in 1 kg OK2 gemäß Tabelle 1 gelöst.

Beispiel 5 (Vergleichsversuch)

400 mg einer handelsüblichen Additivzusammensetzung für Ottokraftstoffe, enthaltend ein Detergenz, hergestellt durch Chlorierung und anschließende Aminierung von Polyisobuten mit $M_N = 950$ mit überwiegend mittenständigen Doppelbindungen, wurden in 1 kg OK1 gemäß Tabelle 1 gelöst.

15 Beispiel 6 (erfindungsgemäß)

400 mg der gleichen handelsüblichen Additivzusammensetzung für Ottokraftstoffe wie in Beispiel 5 wurden in 1 kg OK2 gemäß Tabelle 1 gelöst.

20

Beispiel 7 (Vergleichsversuch)

750 mg einer handelsüblichen Additivzusammensetzung für Ottokraftstoffe, enthaltend 50 Gew.-% des gleichen Polyisobutenamins wie in Beispiel 1 sowie mineralische und synthetische Trägeröle und Korrosionsschutz jeweils in hierfür üblichen Mengen (Keropur® 3222 der Fa. BASF Aktiengesellschaft), wurden in 1 kg OK1 gemäß Tabelle 1 gelöst.

30 Beispiel 8 (erfindungsgemäß)

350 mg der gleichen handelsüblichen Additivzusammensetzung für Ottokraftstoffe wie in Beispiel 7 wurden in 1 kg OK2 gemäß Tabelle 1 gelöst.

35

Beispiel 9 (Vergleichsversuch)

500 mg einer handelsüblichen Additivzusammensetzung für Ottokraftstoffe, enthaltend 60 Gew.-% des gleichen Polyisobutenamins wie in Beispiel 1 sowie mineralisches Trägeröl und Korrosionsschutz jeweils in hierfür üblichen Mengen (Keropur® 3233 der Fa. BASF Aktiengesellschaft), wurden in 1 kg OK1 gemäß Tabelle 1 gelöst.

45

Beispiel 10 (erfindungsgemäß)

500 mg der gleichen handelsüblichen Additivzusammensetzung für Ottokraftstoffe wie in Beispiel 9 wurden in 1 kg OK2 gemäß Tabelle 1 gelöst.

Beispiel 11 (Vergleichsversuch)

700 mg einer Mischung aus 50 Gew.-% des gleichen Polyisobutenamins wie in Beispiel 1 und 50 Gew.-% eines handelsüblichen Verschleißschutzadditivs (Kerocom® 3280 der Fa. BASF Aktiengesellschaft) wurden in 1 kg OK1 gemäß Tabelle 1 gelöst.

Beispiel 12 (erfindungsgemäß)

700 mg der gleichen Additivzusammensetzung für Ottokraftstoffe wie in Beispiel 11 wurden in 1 kg OK2 gemäß Tabelle 1 gelöst.

Anwendungstechnische Untersuchungen

20

Beispiel 13 (Vergleichsversuch)

Ottokraftstoff gemäß Beispiel 1 wurde hinsichtlich seiner Eignung für die Einlaßsystemsaußerkeit untersucht. Dies geschah mit Hilfe von Motorentests, die in Prüfstandsversuchen mit einem Mercedes-Benz-Motor gemäß CEC F-05-A-93 durchgeführt wurden. Erwartungsgemäß wurden die Einlaßventilablagerungen im Vergleich zum nicht additivierten Grundwert laut unten stehender Tabelle 2 deutlich reduziert.

30

Beispiel 14 (erfindungsgemäß)

Ottokraftstoff gemäß Beispiel 2 wurde hinsichtlich seiner Eignung für die Einlaßsystemsaußerkeit untersucht. Dies geschah mit Hilfe von Motorentests, die in Prüfstandsversuchen mit einem Mercedes-Benz-Motor CEC F-05-A-93 durchgeführt wurden. Erwartungsgemäß wurden die Einlaßventilablagerungen im Vergleich zum nicht additivierten Grundwert laut unten stehender Tabelle 2 deutlich reduziert. Überraschenderweise wurde gefunden, daß im Vergleich zu Beispiel 13 mit der gleichen Menge Kraftstoffadditiv eine komplette Reinhaltung der Einlaßventile erreicht wird.

40

Beispiel 15 (Vergleichsversuch)

Ottokraftstoff gemäß Beispiel 3 wurde hinsichtlich seiner Eignung für die Einlaßsystemsaußerkeit untersucht. Dies geschah mit Hilfe von Motorentests, die in Prüfstandsversuchen mit einem Mercedes-

45

Benz-Motor CEC F-05-A-93 durchgeführt wurden. Erwartungsgemäß wurden die Einlaßventilablagerungen im Vergleich zum nicht additivierten Grundwert laut unten stehender Tabelle 2 deutlich reduziert.

5

Beispiel 16 (erfindungsgemäß)

Ottokraftstoff gemäß Beispiel 4 wurde hinsichtlich seiner Eignung für die Einlaßsystemsaußerkeit untersucht. Dies geschah mit Hilfe von Motorentests, die in Prüfstandsversuchen mit einem Mercedes-Benz-Motor CEC F-05-A-93 durchgeführt wurden. Erwartungsgemäß wurden die Einlaßventilablagerungen im Vergleich zum nicht additivierten Grundwert laut unten stehender Tabelle 2 deutlich reduziert. Überraschenderweise wurde gefunden, daß im Vergleich zum Beispiel 15 mit der gleichen Menge Kraftstoffadditiv eine praktisch komplette Reinhaltung der Einlaßventile erreicht wird.

Beispiel 17 (Vergleichsversuch)

Ottokraftstoff gemäß Beispiel 5 wurde hinsichtlich seiner Eignung für die Einlaßsystemsaußerkeit untersucht. Dies geschah mit Hilfe von Motorentests, die in Prüfstandsversuchen mit einem Mercedes-Benz-Motor CEC F-05-A-93 durchgeführt wurden. Erwartungsgemäß wurden die Einlaßventilablagerungen im Vergleich zum nicht additivierten Grundwert laut unten stehender Tabelle 2 deutlich reduziert.

Beispiel 18 (erfindungsgemäß)

Ottokraftstoff gemäß Beispiel 6 wurde hinsichtlich seiner Eignung für die Einlaßsystemsaußerkeit untersucht. Dies geschah mit Hilfe von Motorentests, die in Prüfstandsversuchen mit einem Mercedes-Benz-Motor CEC F-05-A-93 durchgeführt wurden. Erwartungsgemäß wurden die Einlaßventilablagerungen im Vergleich zum nicht additivierten Grundwert laut unten stehender Tabelle 2 deutlich reduziert. Überraschenderweise wurde gefunden, daß im Vergleich zum Beispiel 17 mit der gleichen Menge Kraftstoffadditiv eine praktisch komplette Reinhaltung der Einlaßventile erreicht wird.

Beispiel 19 (Vergleichsversuch)

Ottokraftstoff gemäß Beispiel 7 wurde hinsichtlich seiner Eignung für die Einlaßsystemsaußerkeit untersucht. Dies geschah mit Hilfe von Motorentests, die in Prüfstandsversuchen mit einem Mercedes-Benz-Motor CEC F-05-A-93 durchgeführt wurden. Erwartungsgemäß wurden die Einlaßventilablagerungen im Vergleich zum nicht

additivierten Grundwert laut unten stehender Tabelle 2 deutlich reduziert.

Beispiel 20 (erfindungsgemäß)

5

Ottokraftstoff gemäß Beispiel 8 wurde hinsichtlich seiner Eignung für die Einlaßsystemsaußerkeit untersucht. Dies geschah mit Hilfe von Motorentests, die in Prüfstandsversuchen mit einem Mercedes-Benz-Motor CEC F-05-A-93 durchgeführt wurden. Erwartungsgemäß

10 wurden die Einlaßventilablagerungen im Vergleich zum nicht additivierten Grundwert laut unten stehender Tabelle 2 deutlich reduziert. Überraschenderweise wurde gefunden, daß deutlich weniger Kraftstoffadditiv im Vergleich zu Beispiel 19 zur größenordnungsmäßig gleichen Reinhaltung der Einlaßventile benötigt
15 wird.

Beispiel 21 (Vergleichsversuch)

Ottokraftstoff gemäß Beispiel 9 wurde hinsichtlich seiner Eignung
20 für die Einlaßsystemsaußerkeit untersucht. Dies geschah mit Hilfe von Motorentests, die in Prüfstandsversuchen mit einem Mercedes-Benz-Motor CEC F-05-A-93 durchgeführt wurden. Erwartungsgemäß wurden die Einlaßventilablagerungen im Vergleich zum nicht additivierten Grundwert laut unten stehender Tabelle 2 deutlich
25 reduziert.

Beispiel 22 (erfindungsgemäß)

Ottokraftstoff gemäß Beispiel 10 wurde hinsichtlich seiner Eig-
30 nung für die Einlaßsystemsaußerkeit untersucht. Dies geschah mit Hilfe von Motorentests, die in Prüfstandsversuchen mit einem Mercedes-Benz-Motor CEC F-05-A-93 durchgeführt wurden. Erwartungsgemäß wurden die Einlaßventilablagerungen im Vergleich zum nicht additivierten Grundwert laut unten stehender Tabelle 2 deutlich
35 reduziert. Überraschenderweise wurde gefunden, daß im Vergleich zu Beispiel 21 mit der gleichen Menge Kraftstoffadditiv eine deutlich bessere Reinhaltung der Einlaßventile erreicht wird.

Beispiel 23 (Vergleichsversuch)

40

Ottokraftstoff gemäß Beispiel 11 wurde hinsichtlich seiner Eignung für die Einlaßsystemsaußerkeit untersucht. Dies geschah mit Hilfe von Motorentests, die in Prüfstandsversuchen mit einem Mercedes-Benz-Motor CEC F-05-A-93 durchgeführt wurden. Erwartungsgemäß
45 wurden die Einlaßventilablagerungen im Vergleich zum nicht

additvierten Grundwert laut unten stehender Tabelle 2 deutlich reduziert.

Beispiel 24 (erfindungsgemäß)

5

Ottokraftstoff gemäß Beispiel 12 wurde hinsichtlich seiner Eignung für die Einlaßsystemsaußerkeit untersucht. Dies geschah mit Hilfe von Motorentests, die in Prüfstandsversuchen mit einem Mercedes-Benz-Motor CEC F-05-A-93 durchgeführt wurden. Erwartungsgemäß wurden die Einlaßventilablagerungen im Vergleich zum nicht additvierten Grundwert laut unten stehender Tabelle 2 deutlich reduziert. Überraschenderweise wurde gefunden, daß im Vergleich zu Beispiel 23 mit der gleichen Menge Kraftstoffadditiv eine deutlich bessere Reinhaltung der Einlaßventile erreicht wird.

15

Tabelle 2

20	Additiv	Dosierung [mg/kg]	Einlaßventilablagerungen [mg/Ventil]				
			Ventil 1	Ventil 2	Ventil 3	Ventil 4	im Mittel
	Beispiel 13	700	40	157	7	87	73 (547)
	Beispiel 14	700	0	0	0	0	0 (239)
25	Beispiel 15	600	19	60	86	34	50 (274)
	Beispiel 16	600	0	1	0	2	1 (239)
30	Beispiel 17	400	0	75	17	182	69 (402)
	Beispiel 18	400	0	2	2	0	1 (239)
	Beispiel 19	750	31	120	111	30	73 (592)
35	Beispiel 20	350	46	68	38	67	55 (239)
	Beispiel 21	500	181	95	26	68	93 (475)
	Beispiel 22	500	27	33	14	77	38 (239)
40	Beispiel 23	700	123	12	98	55	72 (558)
	Beispiel 24	700	82	12	23	22	35 (239)

45

(in Klammern der Grundwert des nicht additvierten Kraftstoffes)

Patentansprüche

1. Kraftstoffzusammensetzung enthaltend in einer größeren Menge
5 einen Ottokraftstoff mit einem Aromatengehalt von maximal 42 Vol.-% und einem Schwefelgehalt von maximal 150 Gew.-ppm, sowie in einer kleineren Menge mindestens ein Ottokraftstoffadditiv mit Detergenzwirkung oder mit ventilsitzverschleißhemmender Wirkung, wobei dieses Ottokraftstoffadditiv mindestens einen hydrophoben Kohlenwasserstoffrest mit einem zahlengemittelten Molekulargewicht (M_N) von 85 bis 20 000 und mindestens eine polare Gruppierung ausgewählt aus
- 10 (a) Mono- oder Polyaminogruppen mit bis zu 6 Stickstoffatomen, wobei mindestens ein Stickstoffatom basische Eigenschaften hat,
- 15 (b) Nitrogruppen, ggf. in Kombination mit Hydroxylgruppen,
- 20 (c) Hydroxylgruppen in Kombination mit Mono- oder Polyaminogruppen, wobei mindestens ein Stickstoffatom basische Eigenschaften hat,
- 25 (d) Carboxylgruppen oder deren Alkalimetall- oder Erdalkalimetallsalzen,
- (e) Sulfonsäuregruppen oder deren Alkalimetall- oder Erdalkalimetallsalzen,
- 30 (f) Polyoxy-C₂- bis C₄-alkylengruppierungen, die durch Hydroxylgruppen, Mono- oder Polyaminogruppen, wobei mindestens ein Stickstoffatom basische Eigenschaften hat, oder durch Carbamatgruppen terminiert sind,
- 35 (g) Carbonsäureestergruppen,
- (h) aus Bernsteinsäureanhydrid abgeleitete Gruppierungen mit Hydroxy- und/oder Amino- und/oder Amido- und/oder Imidogruppen und
- 40 (i) durch Mannich-Umsetzung von substituierten Phenolen mit Aldehyden und Mono- oder Polyaminen erzeugte Gruppierungen
- 45 aufweist.

2. Kraftstoffzusammensetzung nach Anspruch 1, enthaltend als Ottokraftstoffadditiv mit polaren Gruppierungen (a) Polyalkenmono- oder Polyalkenpolyamine auf Basis von Polypropen, Polybuten oder Polyisobuten mit $M_N = 300$ bis 5000.
- 5 3. Kraftstoffzusammensetzung nach Anspruch 1, enthaltend als Ottokraftstoffadditiv mit polaren Gruppierungen (b) Umsetzungsprodukte aus Polyisobutenen des mittleren Polymerisationsgrades $P = 5$ bis 100 mit Stickoxiden oder Gemischen aus Stickoxiden und Sauerstoff.
- 10 4. Kraftstoffzusammensetzung nach Anspruch 1, enthaltend als Ottokraftstoffadditiv mit polaren Gruppierungen (c) Umsetzungsprodukte von Polyisobutenepoxiden, erhältlich aus überwiegend endständige Doppelbindungen aufweisendem Polyisobuten mit $M_N = 300$ bis 5000, mit Ammoniak, Mono- oder Polyaminen.
- 15 5. Kraftstoffzusammensetzung nach Anspruch 1, enthaltend als Ottokraftstoffadditiv mit polaren Gruppierungen (d) Copolymere von C_2 - C_{40} -Olefinen mit Maleinsäureanhydrid mit einer Gesamt-Molmasse von 500 bis 20 000, deren Carboxylgruppen ganz oder teilweise zu den Alkalimetall- oder Erdalkalimetallsalzen und ein verbleibender Rest der Carboxylgruppen mit Alkoholen oder Aminen umgesetzt sind.
- 20 6. Kraftstoffzusammensetzung nach Anspruch 1, enthaltend als Ottokraftstoffadditiv mit polaren Gruppierungen (e) Alkalimetall- oder Erdalkalimetallsalze eines Sulfobernsteinsäurealkylesters.
- 25 7. Kraftstoffzusammensetzung nach Anspruch 1, enthaltend als Ottokraftstoffadditiv mit polaren Gruppierungen (f) Polyether oder Polyetheramine, erhältlich durch Umsetzung von C_2 - C_{30} -Alkanolen, C_6 - C_{60} -Alkandiolen, Mono- oder Di- C_2 - C_{30} -alkylaminen, C_1 - C_{30} -Alkylcyclohexanolen oder C_1 - C_{30} -Alkylphenolen mit 1 bis 30 mol Ethylenoxid und/oder Propylenoxid und/oder Butylenoxid pro Hydroxylgruppe oder Aminogruppe und, im Falle der Polyetheramine, durch anschließende reduktive Aminierung mit Ammoniak, Monoaminen oder Polyaminen.
- 30 8. Kraftstoffzusammensetzung nach Anspruch 1, enthaltend als Ottokraftstoffadditiv mit polaren Gruppierungen (g) Ester aus Mono-, Di- oder Tricarbonsäuren mit langkettigen Alkanolen oder Polyolen.
- 35 40 45

9. Kraftstoffzusammensetzung nach Anspruch 1, enthaltend als Ottokraftstoffadditiv mit polaren Gruppierungen (h) Derivate von Polyisobutenylbernsteinsäureanhydrid, erhältlich durch Umsetzung von konventionellem oder hochreaktivem Polyisobuten mit $M_N = 300$ bis 5000 mit Maleinsäureanhydrid auf thermischem Wege oder über das chlorierte Polyisobuten.
10. Kraftstoffzusammensetzung nach Anspruch 1, enthaltend als Ottokraftstoffadditiv mit polaren Gruppierungen (i) Umsetzungsprodukte von polyisobutensubstituierten Phenolen mit Formaldehyd und Mono- oder Polyaminen.
11. Kraftstoffzusammensetzung nach den Ansprüchen 1 bis 10, enthaltend einen Ottokraftstoff mit einem Olefingehalt von maximal 21 Vol.-%.
12. Kraftstoffzusammensetzung nach den Ansprüchen 1 bis 11, enthaltend einen Ottokraftstoff mit einem Benzolgehalt von maximal 1,0 Vol.-%.
13. Kraftstoffzusammensetzung nach den Ansprüchen 1 bis 12, enthaltend einen Ottokraftstoff mit einem Sauerstoffgehalt von maximal 2,7 Gew.-%.
14. Kraftstoffzusammensetzung nach den Ansprüchen 1 bis 13, enthaltend die Ottokraftstoffadditive mit den polaren Gruppierungen (a) bis (i) in einer Menge von 1 bis 5000 Gew.-ppm.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No.

PCT/EP 00/00911

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

IPC 7 C10L1/22 C10L1/18 C10L1/24 C10L10/00 C10L10/04

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 7 C10L

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	WO 95 23836 A (ORR WILLIAM C) 8 September 1995 (1995-09-08)	1,2, 11-14
Y	page 176 -page 177 page 192 -page 193	3-9
Y	DE 44 25 835 A (BASF AG) 25 January 1996 (1996-01-25) cited in the application the whole document	3
Y	EP 0 476 485 A (BASF AG) 25 March 1992 (1992-03-25) cited in the application the whole document	4
	-/--	

☒ Further documents are listed in the continuation of box C.

☒ Patent family members are listed in annex.

* Special categories of cited documents :

- *A* document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- *E* earlier document but published on or after the international filing date
- *L* document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- *O* document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- *P* document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- *T* later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- *X* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- *Y* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.
- * & * document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

11 July 2000

Date of mailing of the international search report

18/07/2000

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3018

Authorized officer

De La Morinerie, B

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No.

PCT/EP 00/00911

C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	EP 0 307 815 A (BASF AG) 22 March 1989 (1989-03-22) cited in the application the whole document ---	5
Y	EP 0 639 632 A (OEMV AG) 22 February 1995 (1995-02-22) cited in the application the whole document ---	6
Y	EP 0 543 225 A (BASF AG) 26 May 1993 (1993-05-26) the whole document ---	7
Y	EP 0 704 519 A (BASF AG) 3 April 1996 (1996-04-03) the whole document ---	8
A		2,7
Y	EP 0 565 285 A (BP CHEM INT LTD) 13 October 1993 (1993-10-13) the whole document ---	9
X	FR 2 174 787 A (ETHYL CORP) 19 October 1973 (1973-10-19) page 2; table 1 ---	1,11,13, 14
X	WO 95 33022 A (ORR WILLIAM C) 7 December 1995 (1995-12-07) page 165; examples 130,141 page 192 -page 194 ---	1,2, 11-14
Y		10
Y	EP 0 831 141 A (BP CHEMICALS ADDITIVES) 25 March 1998 (1998-03-25) cited in the application the whole document ---	10
A	US 4 191 537 A (HONNEN LEWIS R ET AL) 4 March 1980 (1980-03-04) the whole document ---	7
A	US 5 057 122 A (BLAIN DAVID A ET AL) 15 October 1991 (1991-10-15) the whole document ---	7
A	WO 94 20593 A (MOBIL OIL CORP) 15 September 1994 (1994-09-15) the whole document ---	1,9,11, 13,14
A	WO 96 25473 A (BP CHEMICALS ADDITIVES ;ARAL AG (DE); GOGOLIN ORTWIN AUGUST WILHEL) 22 August 1996 (1996-08-22) the whole document -----	1,9,14

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/EP 00/00911

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)	Publication date
WO 9523836	A	08-09-1995	AP 790 A	16-12-1999
			AU 2115995 A	18-09-1995
			AU 3511799 A	19-08-1999
			BR 9507429 A	16-09-1997
			CA 2184490 A	08-09-1995
			CN 1150447 A	21-05-1997
			EP 0748364 A	18-12-1996
			JP 10500710 T	20-01-1998
			AU 2692795 A	21-12-1995
			CA 2194572 A	07-12-1995
			EP 0763079 A	19-03-1997
			WO 9533022 A	07-12-1995
DE 4425835	A	25-01-1996	AT 179455 T	15-05-1999
			CA 2154040 A	22-01-1996
			DE 59505785 D	02-06-1999
			WO 9603479 A	08-02-1996
			EP 0772664 A	14-05-1997
			ES 2130631 T	01-07-1999
			GR 3030188 T	31-08-1999
			JP 10503225 T	24-03-1998
			US 5980594 A	09-11-1999
EP 0476485	A	25-03-1992	DE 4030164 A	26-03-1992
			AT 105328 T	15-05-1994
			CA 2050967 A	25-03-1992
			DE 59101564 D	09-06-1994
EP 0307815	A	22-03-1989	DE 3730885 A	23-03-1989
			DE 3733172 A	20-04-1989
			AT 74620 T	15-04-1992
			DE 3869887 A	14-05-1992
			JP 1101394 A	19-04-1989
			US 4959077 A	25-09-1990
EP 0639632	A	22-02-1995	AT 400149 B	25-10-1995
			AT 163693 A	15-02-1995
			AT 165389 T	15-05-1998
			CZ 9401985 A	15-03-1995
			DE 59405767 D	28-05-1998
			HU 69325 A, B	28-09-1995
			SI 639632 T	31-08-1998
			SK 97094 A	08-03-1995
EP 0543225	A	26-05-1993	DE 4137852 A	19-05-1993
			AT 134653 T	15-03-1996
			CA 2082436 A	17-05-1993
			DE 59205470 D	04-04-1996
			ES 2083653 T	16-04-1996
			US 5348560 A	20-09-1994
EP 0704519	A	03-04-1996	DE 4434603 A	04-04-1996
			DE 59505828 D	10-06-1999
			ES 2131243 T	16-07-1999
EP 0565285	A	13-10-1993	AU 3684493 A	14-10-1993
			DE 69310605 D	19-06-1997
			DE 69310605 T	04-09-1997

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

Internal Application No

PCT/EP 00/00911

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
EP 0565285 A		HU 68485 A, B JP 6279770 A US 5588973 A ZA 9302328 A	28-06-1995 04-10-1994 31-12-1996 30-09-1994
FR 2174787 A	19-10-1973	NONE	
WO 9533022 A	07-12-1995	AP 790 A AU 2115995 A AU 2692795 A AU 3511799 A BR 9507429 A CA 2184490 A CA 2194572 A CN 1150447 A EP 0748364 A EP 0763079 A JP 10500710 T WO 9523836 A	16-12-1999 18-09-1995 21-12-1995 19-08-1999 16-09-1997 08-09-1995 07-12-1995 21-05-1997 18-12-1996 19-03-1997 20-01-1998 08-09-1995
EP 0831141 A	25-03-1998	JP 10158323 A US 5876468 A	16-06-1998 02-03-1999
US 4191537 A	04-03-1980	US 4160648 A AU 501906 B AU 2630277 A AU 511181 B AU 2630377 A BE 855961 A BE 855962 A BR 7703994 A BR 7703995 A CA 1096879 A CA 1103026 A CH 636638 A DE 2727502 A DE 2727503 A FR 2361462 A FR 2355903 A GB 1581868 A GB 1585389 A IT 1114809 B IT 1115528 B JP 1048377 C JP 53002505 A JP 55039278 B JP 1104848 C JP 52155607 A JP 56048556 B MX 4821 E MX 170768 B NL 7706849 A, B, NL 7706850 A, B, US 4236020 A US 4288612 A	10-07-1979 05-07-1979 04-01-1979 31-07-1980 04-01-1979 17-10-1977 17-10-1977 04-04-1978 04-04-1978 03-03-1981 16-06-1981 15-06-1983 12-01-1978 29-12-1977 10-03-1978 20-01-1978 31-12-1980 04-03-1981 27-01-1986 03-02-1986 28-05-1981 11-01-1978 09-10-1980 16-07-1982 24-12-1977 16-11-1981 21-10-1982 13-09-1993 23-12-1977 23-12-1977 25-11-1980 08-09-1981
US 5057122 A	15-10-1991	US 5217635 A	08-06-1993

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

Internat'l Application No

PCT/EP 00/00911

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
WO 9420593 A	15-09-1994	AU 669439 B AU 6442994 A DE 69415512 D DE 69415512 T EP 0687289 A NZ 263659 A US 6004361 A US 5976201 A	06-06-1996 26-09-1994 04-02-1999 20-05-1999 20-12-1995 26-11-1996 21-12-1999 02-11-1999
WO 9625473 A	22-08-1996	NONE	

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Intern: .ales Aktenzeichen

PCT/EP 00/00911

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES

IPK 7 C10L1/22 C10L1/18 C10L1/24 C10L10/00 C10L10/04

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

IPK 7 C10L

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	WO 95 23836 A (ORR WILLIAM C) 8. September 1995 (1995-09-08)	1,2, 11-14
Y	Seite 176 -Seite 177 Seite 192 -Seite 193 ---	3-9
Y	DE 44 25 835 A (BASF AG) 25. Januar 1996 (1996-01-25) in der Anmeldung erwähnt das ganze Dokument ---	3
Y	EP 0 476 485 A (BASF AG) 25. März 1992 (1992-03-25) in der Anmeldung erwähnt das ganze Dokument ---	4
	--- -/-	

☒ Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

☒ Siehe Anhang Patentfamilie

* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

"E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

"&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

11. Juli 2000

Absenddatum des internationalen Recherchenberichts

18/07/2000

Name und Postanschrift der internationalen Recherchenbehörde

Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

De La Morinerie, B

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationale Aktenzeichen

PCT/EP 00/00911

C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
Y	EP 0 307 815 A (BASF AG) 22. März 1989 (1989-03-22) in der Anmeldung erwähnt das ganze Dokument ----	5
Y	EP 0 639 632 A (OEMV AG) 22. Februar 1995 (1995-02-22) in der Anmeldung erwähnt das ganze Dokument ----	6
Y	EP 0 543 225 A (BASF AG) 26. Mai 1993 (1993-05-26) das ganze Dokument ----	7
Y	EP 0 704 519 A (BASF AG) 3. April 1996 (1996-04-03) das ganze Dokument ----	8
A		2,7
Y	EP 0 565 285 A (BP CHEM INT LTD) 13. Oktober 1993 (1993-10-13) das ganze Dokument ----	9
X	FR 2 174 787 A (ETHYL CORP) 19. Oktober 1973 (1973-10-19) Seite 2; Tabelle 1 ----	1,11,13, 14
X	WO 95 33022 A (ORR WILLIAM C) 7. Dezember 1995 (1995-12-07) Seite 165; Beispiele 130,141 Seite 192 -Seite 194 ----	1,2, 11-14
Y		10
Y	EP 0 831 141 A (BP CHEMICALS ADDITIVES) 25. März 1998 (1998-03-25) in der Anmeldung erwähnt das ganze Dokument ----	10
A	US 4 191 537 A (HONNEN LEWIS R ET AL) 4. März 1980 (1980-03-04) das ganze Dokument ----	7
A	US 5 057 122 A (BLAIN DAVID A ET AL) 15. Oktober 1991 (1991-10-15) das ganze Dokument ----	7
A	WO 94 20593 A (MOBIL OIL CORP) 15. September 1994 (1994-09-15) das ganze Dokument ----	1,9,11, 13,14
A	WO 96 25473 A (BP CHEMICALS ADDITIVES ;ARAL AG (DE); GOGOLIN ORTWIN AUGUST WILHEL) 22. August 1996 (1996-08-22) das ganze Dokument -----	1,9,14

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internat. les Aktenzeichen

PCT/EP 00/00911

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
WO 9523836 A	08-09-1995	AP 790 A	16-12-1999
		AU 2115995 A	18-09-1995
		AU 3511799 A	19-08-1999
		BR 9507429 A	16-09-1997
		CA 2184490 A	08-09-1995
		CN 1150447 A	21-05-1997
		EP 0748364 A	18-12-1996
		JP 10500710 T	20-01-1998
		AU 2692795 A	21-12-1995
		CA 2194572 A	07-12-1995
		EP 0763079 A	19-03-1997
		WO 9533022 A	07-12-1995
DE 4425835 A	25-01-1996	AT 179455 T	15-05-1999
		CA 2154040 A	22-01-1996
		DE 59505785 D	02-06-1999
		WO 9603479 A	08-02-1996
		EP 0772664 A	14-05-1997
		ES 2130631 T	01-07-1999
		GR 3030188 T	31-08-1999
		JP 10503225 T	24-03-1998
		US 5980594 A	09-11-1999
EP 0476485 A	25-03-1992	DE 4030164 A	26-03-1992
		AT 105328 T	15-05-1994
		CA 2050967 A	25-03-1992
		DE 59101564 D	09-06-1994
EP 0307815 A	22-03-1989	DE 3730885 A	23-03-1989
		DE 3733172 A	20-04-1989
		AT 74620 T	15-04-1992
		DE 3869887 A	14-05-1992
		JP 1101394 A	19-04-1989
		US 4959077 A	25-09-1990
EP 0639632 A	22-02-1995	AT 400149 B	25-10-1995
		AT 163693 A	15-02-1995
		AT 165389 T	15-05-1998
		CZ 9401985 A	15-03-1995
		DE 59405767 D	28-05-1998
		HU 69325 A, B	28-09-1995
		SI 639632 T	31-08-1998
		SK 97094 A	08-03-1995
EP 0543225 A	26-05-1993	DE 4137852 A	19-05-1993
		AT 134653 T	15-03-1996
		CA 2082436 A	17-05-1993
		DE 59205470 D	04-04-1996
		ES 2083653 T	16-04-1996
		US 5348560 A	20-09-1994
EP 0704519 A	03-04-1996	DE 4434603 A	04-04-1996
		DE 59505828 D	10-06-1999
		ES 2131243 T	16-07-1999
EP 0565285 A	13-10-1993	AU 3684493 A	14-10-1993
		DE 69310605 D	19-06-1997
		DE 69310605 T	04-09-1997

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internat. des Aktenzeichen

PCT/EP 00/00911

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
EP 0565285 A		HU 68485 A, B JP 6279770 A US 5588973 A ZA 9302328 A	28-06-1995 04-10-1994 31-12-1996 30-09-1994
FR 2174787 A	19-10-1973	KEINE	
WO 9533022 A	07-12-1995	AP 790 A AU 2115995 A AU 2692795 A AU 3511799 A BR 9507429 A CA 2184490 A CA 2194572 A CN 1150447 A EP 0748364 A EP 0763079 A JP 10500710 T WO 9523836 A	16-12-1999 18-09-1995 21-12-1995 19-08-1999 16-09-1997 08-09-1995 07-12-1995 21-05-1997 18-12-1996 19-03-1997 20-01-1998 08-09-1995
EP 0831141 A	25-03-1998	JP 10158323 A US 5876468 A	16-06-1998 02-03-1999
US 4191537 A	04-03-1980	US 4160648 A AU 501906 B AU 2630277 A AU 511181 B AU 2630377 A BE 855961 A BE 855962 A BR 7703994 A BR 7703995 A CA 1096879 A CA 1103026 A CH 636638 A DE 2727502 A DE 2727503 A FR 2361462 A FR 2355903 A GB 1581868 A GB 1585389 A IT 1114809 B IT 1115528 B JP 1048377 C JP 53002505 A JP 55039278 B JP 1104848 C JP 52155607 A JP 56048556 B MX 4821 E MX 170768 B NL 7706849 A, B, NL 7706850 A, B, US 4236020 A US 4288612 A	10-07-1979 05-07-1979 04-01-1979 31-07-1980 04-01-1979 17-10-1977 17-10-1977 04-04-1978 04-04-1978 03-03-1981 16-06-1981 15-06-1983 12-01-1978 29-12-1977 10-03-1978 20-01-1978 31-12-1980 04-03-1981 27-01-1986 03-02-1986 28-05-1981 11-01-1978 09-10-1980 16-07-1982 24-12-1977 16-11-1981 21-10-1982 13-09-1993 23-12-1977 23-12-1977 25-11-1980 08-09-1981
US 5057122 A	15-10-1991	US 5217635 A	08-06-1993

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internat. des Aktenzeichen

PCT/EP 00/00911

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
WO 9420593 A	15-09-1994	AU 669439 B	06-06-1996
		AU 6442994 A	26-09-1994
		DE 69415512 D	04-02-1999
		DE 69415512 T	20-05-1999
		EP 0687289 A	20-12-1995
		NZ 263659 A	26-11-1996
		US 6004361 A	21-12-1999
		US 5976201 A	02-11-1999
WO 9625473 A	22-08-1996	KEINE	